

## 白芷の調製法と化学的品質評価（第4報） 保存及び乾燥条件の違いによる成分含量の変動

Preparation and Chemical Evaluation of Angelica dahurica Root (Part IV)  
Content-variation of Some Constituents  
Due to Difference in Preservation and Drying Conditions

姉帯 正樹      熊谷 健夫\*      柴田 敏郎\*

Masaki ANETAI, Takeo KUMAGAI and Toshiro SHIBATA

最近、生薬の調製加工工程における成分の含量変化が明らかにされつつある<sup>1)</sup>。すなわち、セリ科の薬用植物であるハマボウフウ、トウキ、ホッカイトウキ、センキュウ及びミシマサイコの根または根茎を自然乾燥した際に観察される希エタノールエキス含量の増加は、時間の経過と共に生成するショ糖に起因していた<sup>2-5)</sup>。また、ハマボウフウ、トウキ、ホッカイトウキではその調製加工工程がストレスとなり、ストレス化合物である3種類のフロクマリン(psoralen, xanthotoxin 及び bergapten) が産生し、それらの含量は調製条件の違いにより大きく変動した<sup>2, 6-8)</sup>。ハマボウフウでは、調製(乾燥)法が異なると薬理作用に影響を及ぼすことも知られている<sup>9)</sup>。

白芷はヨロイグサ *Angelica dahurica* (セリ科) の乾燥根で、希エタノールエキス、糖、フロクマリンの含量で化学的に品質評価されている<sup>10-12)</sup>。これまでに、ヨロイグサを自然乾燥すると経時的にショ糖が生成し、それに伴って希エタノールエキス含量も増加することが明らかになっている<sup>10, 12)</sup>。白芷は psoralen, xanthotoxin 及び bergapten を含有<sup>11)</sup> しており、ヨロイグサの生根もストレス負荷によりこれらの3化合物を産生することが認められている<sup>13)</sup>。従って、ヨロイグサから白芷を調製する過程においてもストレス化合物の産生と蓄積が推察される。

そこで今回は、ヨロイグサ生根を種々の条件で乾燥あるいは保存した後に乾燥し、それらの条件の違いがフロクマリン類、糖及び希エタノールエキス含量に及ぼす影響を検討した。

### 方 法

#### 1. 試料調製法

北海道薬用植物栽培試験場(名寄市)において奈良県産種子を導入し、同場で1世代継代した種子を播種して育成

した1年生ヨロイグサ70株を2001年10月22日に掘上げた。全草を土塊付のまま北海道立衛生研究所(札幌市北区)に郵送し、10月23日に以下に示すA~Nの処理を施した。各処理には5株を供し、A~Iは茎葉を切除した水洗根、J~Lは根を水洗した全草、Mは水洗しない全草を用いた。なお、温風乾燥は送風定温恒温器(ヤマト科学(株), DN-61)を用い、50°Cで72時間行った。その際、太い主根は縦割りにした。

A: 直ちに温風乾燥した。

B: 50°Cの温風を24時間当てた後、屋外に48時間放置した。この操作を3回繰り返した。

C: 33~35°Cに24時間保温(ヤマト科学(株), 定温乾燥器DS-42使用)後、屋外に48時間放置した。この操作を5回繰り返した後、温風(50°C, 24時間)で仕上げた。

D: 野菜保存用ポリエチレン袋(以下野菜用袋, 原料樹脂: 気体通過性、透湿性を有するポリエチレン, 商品名: 愛菜果, (株)ニッショー)に入れ、室温(22~30°C)に15日間(11月7日まで)放置後、温風乾燥した。

E: 野菜用袋に入れ、冷蔵庫(2.5°C)で24時間保存後、室温に24時間放置した。この操作を8回繰り返した後、温風乾燥した。

F: 野菜用袋に入れ、冷蔵庫で15日間保存後、温風乾燥した。

G: 家庭用ポリ袋(以下ポリ袋, 原料樹脂: ポリエチレン, 商品名: セキスイポリ袋, 積水化学工業(株))に入れ、冷蔵庫で15日間保存後、温風乾燥した。

H: 主根を輪切り(厚さ0.5~1 cm)にした後、野菜用袋に入れ、室温(24~30°C)に7日間(10月30日まで)放置後、温風乾燥した。

I: 主根を輪切りにした後、野菜用袋に入れ、冷蔵庫で7日間保存後、温風乾燥した。

J: 茎葉を紐で縛った後、風乾舎内で30日間はさ掛けした(11月22日まで, 外気温: -1.3~16.3°C<sup>14)</sup>)。茎葉を切

\* 国立医薬品食品衛生研究所北海道薬用植物栽培試験場

除後、温風乾燥した。

K：屋外で30日間はさ掛けし、茎葉を切除後、温風乾燥した。

L：ビニールハウス内で30日間はさ掛けした（0～45℃、湿度約60%）。茎葉を切除後、温風乾燥した。

M：土塊を付けたまま、風乾舎内で30日間はさ掛けした。茎葉を切除し、水洗後、温風乾燥した。

## 2. 成分定量法

### 1) 分析用試料の調製

処理A～Nで得られた乾燥根各5株を押切りで細切混合後、超遠心粉碎機で粉碎（㈱ロッチェ ZM100，メッシュスクリーン穴径1.0 mm）し、分析用試料A～Nとした。

### 2) フロクマリン含量

既報<sup>1)</sup>に従い、psoralen, xanthotoxin, bergapten, byak-angelicol, oxypeucedanin, imperatorin, phellopterin 及び isoimperatorin を HPLC で定量した。

### 3) 希エタノールエキス含量

第十四改正日本薬局方・生薬試験法に従った。

### 4) 糖含量

前報<sup>12)</sup>に従い、果糖、ブドウ糖及びショ糖を HPLC で定量した。

## 結果及び考察

表1にフロクマリン8種、糖3種及び希エタノールエキスの定量結果を示す。

ハマボウフウ、トウキ類では保存、乾燥、切断などによ

りストレス化合物である psoralen, xanthotoxin 及び bergapten の含量が大きく増加することが知られている<sup>2, 6-8)</sup>。一例を示すと、ハマボウフウ生根のスライスを野菜保存用袋に入れ、室温に10日間保存したところ、ストレス化合物の合計含量は1.4 mg/100 g から約550 mg/100 g に増加した<sup>2)</sup>。

このようなことから、ヨロイグサの生根を保存、乾燥、切断することにより、ストレス化合物が産生し、さらには蓄積することが推察された。しかし、psoralen, xanthotoxin 及び bergapten の含量は一部の保存試料と一部の自然乾燥（はさ掛け）試料で増加が認められたが、収穫後直ちに温風乾燥した試料A及びBとの差は小さかった。また、ホッカイトウキの場合、30℃前後に間欠的に保温することによりストレス化合物含量は50倍以上に増加<sup>7)</sup>したことから、今回条件Cを設定したが、3化合物の増減は認められなかった。なお、ストレス化合物以外のフロクマリン5種の含量は、刻んで保存した試料H及びIで低い傾向にあった。

このように、今回試験に用いたヨロイグサのストレス化合物産生能はハマボウフウ、トウキ類と比較すると小さかった。このため、本ヨロイグサを基原とする北海道産白芷においては、浜防風及び当帰で認められた調製条件の違いによるストレス化合物含量の変動<sup>2, 6-8)</sup>はより小さくなると考えられた。

一方、糖及び希エタノールエキス含量は保存方法や乾燥法の違いにより大きく異なった。すなわち、直ちに温風乾

表1 白芷の調製法と成分定量結果

試料	保存法／乾燥法	フロクマリン (mg/100 g)								糖 (%)				希エタノール エキス(%)
		Pso	Xan	Ber	BAng	OPeu	Imp	Phe	iImp	Fru	Glc	Suc	合計	
A	温風 (50℃, 72時間)	0.3	3.7	7.5	313	427	200	84	122	0.3	0.4	9.6	10.3	22.8
B	温風 (50℃, 間欠)	0.5	2.8	5.2	224	389	117	58	144	0.4	0.6	8.7	9.7	21.1
C	保温 (35℃, 間欠)	0.9	2.0	5.4	296	370	170	72	86	1.3	2.0	22.8	26.1	37.8
D	保存 (野菜用袋, 室温)	0.6	6.7	8.0	352	464	179	78	110	0.4	0.5	13.7	14.6	26.3
E	保存 (野菜用袋, 室温⇄冷蔵室)	0.3	2.1	3.2	173	311	135	84	98	0.2	0.5	27.0	27.7	39.0
F	保存 (野菜用袋, 冷蔵室)	1.1	4.8	9.5	273	411	126	68	100	0.2	0.4	28.2	28.8	40.3
G	保存 (ポリ袋, 冷蔵室)	0.3	4.1	10.4	454	467	259	81	107	0.4	0.3	36.1	36.8	49.3
H	保存 (刻み, 野菜用袋, 室温)	2.3	14.8	4.2	68	161	62	39	49	0.8	0.6	12.4	13.8	23.2
I	保存 (刻み, 野菜用袋, 冷蔵室)	4.8	7.6	3.6	129	194	93	38	58	0.9	0.6	14.6	16.1	25.5
J	はさ掛け (風乾舎)	4.2	7.4	8.1	486	500	186	55	96	0.7	0.7	24.3	25.7	36.1
K	はさ掛け (屋外)	1.0	4.6	6.0	371	574	210	74	149	0.5	0.5	24.4	25.4	37.3
L	はさ掛け (ビニールハウス内)	8.6	8.8	5.3	295	399	182	83	111	1.5	1.6	31.6	34.7	45.3
M	はさ掛け (風乾舎, 非水洗株)	1.2	3.2	3.6	172	351	123	62	132	0.9	1.1	35.9	37.9	47.6

Pso : psoralen Xan : xanthotoxin Ber : bergapten BAng : byak-angelicol OPeu : oxypeucedanin Imp : imperatorin  
Phe : phellopterin iImp : isoimperatorin Fru : 果糖 Glc : ブドウ糖 Suc : ショ糖

保存 : 15日間 (D, F, G) または 7日間 (H, I) 室温 : 22～30℃ 冷蔵室 : 2.5℃

はさ掛け : 2001年10月22日～11月22日 (30日間, -1.3～16.3℃)

B : 50℃の温風を24時間当てた後, 48時間屋外放置, 3回繰り返し。C : 約35℃に24時間保温後, 48時間屋外放置, 5回繰り返し。

E : 冷蔵室に24時間保存後, 24時間室温放置, 8回繰り返し。

乾燥した試料A, Bのショ糖及び希エタノールエキスの含量は最も低い値 (A: 9.6及び22.8%, B: 8.7及び21.1%) を示し, 全形のままポリ袋に入れ低温で保存した試料Gは最も高い値 (31.6及び49.3%) を示した. 野菜用袋中に入れ, 1日置きに低温で保存した試料E及び低温で保存を継続した試料Fの両含量も高い値 (E: 27.0及び39.0%, F: 28.2及び40.3%) を示した.

はさ掛けにより自然乾燥した試料J (風乾舎) 及びK (屋外) 間で希エタノールエキスの含量に差は認められず, 各々の値は36.1及び37.3%であった. 一方, はさ掛けを1カ月間行っても根は半乾きであり, この間に0℃前後の寒さに当たったビニールハウス内乾燥品Lと土塊付株Mの希エタノールエキスの含量はより高い値 (L: 45.3%, M: 47.6%) を示した. これらの試料ではショ糖のみならず果糖及びブドウ糖も増加していた.

希エタノールエキスの含量とショ糖含量間の回帰方程式は  $y = 1.02x + 11.9$  ( $r = 0.994$ ,  $n = 13$ ,  $p < 0.01$ ) であり, その傾きは希エタノールエキスの増加がショ糖の増加に依存することを示していた.

低温処理によりデンプンがショ糖に変換されることは, オタネニンジン (ウコギ科, 生薬名: 人参) の生根及びジャガイモ (ナス科) の塊茎で認められている<sup>15, 16)</sup>. 従って, ヨロイグサの根においても生あるいは生に近い状態で低温環境に置かれた場合, デンプンからショ糖への酵素的変換が起こったと考えられる.

以上のように, ヨロイグサの生根は乾燥<sup>10, 12)</sup>に加え, 低温処理によってもショ糖が生成し, その量がそのまま希エタノールエキスの増加量となることが明らかになった.

今後は, ヨロイグサ, トウキ類などを対象に, 生根の低

温処理によるショ糖含量の変化を経時的に検討する予定である.

終りに臨み, 札幌市の気象データについてご教示頂いた財団法人日本気象協会北海道支社気象予報士猪股竜彦氏に深謝します.

## 文 献

- 1) 姉帯正樹, 高杉光雄, 畠山好雄: 薬用植物研究, **21**(2), 34 (1998)
- 2) 姉帯正樹, 増田隆広, 高杉光雄: Natural Medicines, **51**(4), 442 (1997)
- 3) 姉帯正樹, 畠山好雄: 道衛研所報, **51**, 13 (2001)
- 4) 青柳光敏, 飯田 修, 姉帯正樹: 道衛研所報, **51**, 100 (2001)
- 5) 姉帯正樹, 柴田敏郎, 菱田敦之, 畠山好雄: 道衛研所報, **52**, 78 (2002)
- 6) 姉帯正樹, 増田隆広, 高杉光雄: Natural Medicines, **50**(6), 399 (1996)
- 7) 姉帯正樹, 増田隆広, 高杉光雄, 柴田敏郎, 畠山好雄: 道衛研所報, **52**, 12 (2002)
- 8) 姉帯正樹, 増田隆広, 高杉光雄: 道衛研所報, **52**, 19 (2002)
- 9) Okuyama E, Hasegawa T, Matsushita T, Fujimoto H, Ishibashi M, Yamazaki M, Hosokawa M, Hiraoka N, Anetai M, Masuda T, Takasugi M: Natural Medicines, **52**(6), 491 (1998)
- 10) 姉帯正樹, 青柳光敏, 古木益夫: 道衛研所報, **51**, 94 (2001)
- 11) 姉帯正樹: 医薬品研究, **33**(3), 203 (2002)
- 12) 佐藤正幸, 青柳光敏, 姉帯正樹: 道衛研所報, **52**, 83 (2002)
- 13) 増田隆広: 薬用植物の産生するストレス化合物と生薬成分 (学位論文), 北海道大学, 2000
- 14) (財)日本気象協会北海道支社データベース (札幌, 2001年10, 11月)
- 15) 金 順基, 檜山千都子, 山崎和男, 平岡りつ子, 田中 治, 金 済勲, 金 一赫: 生薬学雑誌, **33**(4), 245 (1979)
- 16) Arreguin-Lozano B, Bonner J: Plant Physiol., **24**, 720 (1949)

